

This Page Is Inserted by IFW Operations
and is not a part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

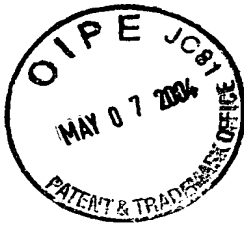
Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

**As rescanning documents *will not* correct images,
please do not report the images to the
Image Problem Mailbox.**



MAIL STOP MISSING PARTS

PATENT
1315-051

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

Applicants: Byong Kee KIM et al. Conf.: 1581
Serial No.: 10/747,655 Art Unit: 1742
Filed: December 30, 2003 Examiner: Not assigned
For: PROCESS FOR MANUFACTURING NANO-PHASE TAC-TRANSITION
METAL BASED COMPLEX POWDER (*as amended*)

SUBMISSION OF PRIORITY DOCUMENT

Commissioner for Patents
P. O. Box 1450
Alexandria, VA 22313-1450

May 7, 2004

Sir:

At the time the above-identified application was filed, priority was claimed based on the following application, a certified copy of which is attached:

Application No. 10-2003-0028766, filed in the Republic of Korea on May 7, 2003.

To any extent necessary during prosecution of the present application, Applicants hereby request an extension of time if not otherwise requested.

Respectfully submitted,

LOWE HAUPTMAN GILMAN & BERNER, LLP

By: 

Allan M. Lowe, Reg. No. 19,641

1700 Diagonal Road, Suite 300
Alexandria, VA 22314
703-684-1111 telephone
703-518-5499 telecopier
AML:rk



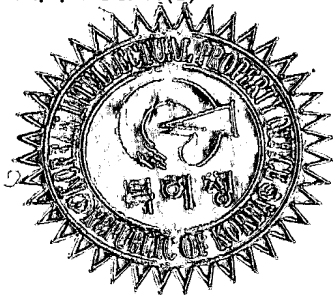
별첨 사본은 아래 출원의 원본과 동일함을 증명함.

This is to certify that the following application annexed hereto is a true copy from the records of the Korean Intellectual Property Office.

출원 번호 : 10-2003-0028766
Application Number

출원 년 월 일 : 2003년 05월 07일
Date of Application MAY 07, 2003

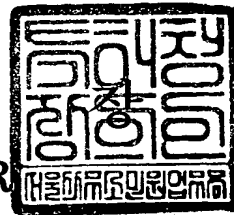
출원인 : 한국기계연구원 외 1명
Applicant(s) KOREA INSTITUTE OF MACHINENRY & MATERIALS, et al



2004 년 03 월 10 일

특 허 청

COMMISSIONER



【서지사항】

【서류명】	특허출원서
【권리구분】	특허
【수신처】	특허청장
【제출일자】	2003.05.07
【발명의 명칭】	나노구조형 TaC-전이금속계 복합분말 제조방법
【발명의 영문명칭】	Process for Manufacturing Nano TaC- Transition Metal Based Composite Powder
【출원인】	
【명칭】	한국기계연구원
【출원인코드】	3-1999-902348-1
【출원인】	
【명칭】	주식회사 나노테크
【출원인코드】	1-1999-043071-7
【대리인】	
【명칭】	특허법인 원전
【대리인코드】	9-2000-100001-9
【지정된변리사】	임석재 , 최영민
【포괄위임등록번호】	2002-076103-3
【포괄위임등록번호】	2003-028207-7
【발명자】	
【성명의 국문표기】	김병기
【성명의 영문표기】	KIM, Byoung Kee
【주민등록번호】	560220-1042011
【우편번호】	607-753
【주소】	부산광역시 동래구 온천2동 럭키아파트 1동 105호
【국적】	KR
【발명자】	
【성명의 국문표기】	홍성현
【성명의 영문표기】	HONG, Seong Hyeon
【주민등록번호】	621117-1932116
【우편번호】	641-111
【주소】	경상남도 창원시 가음동 13-3 한국기계연구소 아파트 308호
【국적】	KR

【발명자】**【성명의 국문표기】**

우용원

【성명의 영문표기】

WOO, Yong Won

【주민등록번호】

581028-1009510

【우편번호】

463-827

【주소】

경기도 성남시 분당구 야탑동 339 장미마을 831동 306호

【국적】

KR

【심사청구】

청구

【취지】

특허법 제42조의 규정에 의한 출원, 특허법 제60조의 규정에 의한 출원심사를 청구합니다. 대리인
특허법인 원전 (인)

【수수료】**【기본출원료】**

14 면 29,000 원

【가산출원료】

0 면 0 원

【우선권주장료】

0 건 0 원

【심사청구료】

5 항 269,000 원

【합계】

298,000 원

【감면사유】

정부출연연구기관

【감면후 수수료】

149,000 원

【첨부서류】

1. 요약서·명세서(도면)_1통 2. 소기업임을 증명하는
서류[사본]_1통(이하에 명기한 제출서류에 첨 부된 것을 원용) [서류명]특허출원서 [출원번호]10-2003-0026985

【요약서】**【요약】**

본 발명은 나노구조형 TaC- 천이금속계 복합분말의 제조방법에 관한 것이다.

본 발명에 따른 TaC- 천이금속계 복합분말의 제조방법은, 먼저 Ta 염화물염 또는 Ta옥살산과 천이금속이 함유된 수용성 염을 물이나 유기용매에 분산시키거나 용해후 교반한다. 이 교반된 혼합원료를 분무건조하여 전구체 분말을 얻는 다음, 상기 전구체 분말을 하소열처리하여 초미립 Ta- 천이금속 복합산화물 분말을 만든다. 그 후, 상기 초미립 Ta- 천이금속 복합산화물 분말에 나노크기의 탄소입자를 혼합한 후, 이를 건조된 복합산화물 분말을 비산화성 분위기에 서 환원, 침탄 열처리한다.

이렇게 제조된 초미립 TaC- 천이금속 복합분말은 기존의 방법으로 얻는 것보다 미세한 TaC가 함유되어 있다.

【대표도】

도 1

【색인어】

TaC, 천이금속, 초미립, 나노, 절삭공구

【명세서】**【발명의 명칭】**

나노구조형 TaC- 천이금속계 복합분말 제조방법{Process for Manufacturing Nano TaC-Transition Metal Based Composite Powder}

【도면의 간단한 설명】

도 1은, 본 발명에 따라 제조된 TaC- Co 복합분말에 대한 X선 회절 패턴을 도시한 그래프이다.

도 2a 내지 도 2c는, 본 발명에 따라 제조된 TaC- Co 복합분말에 대한 투과전자현미경 조직사진들이다.

【발명의 상세한 설명】**【발명의 목적】****【발명이 속하는 기술분야 및 그 분야의 종래기술】**

<3> 본 발명은 나노구조형 TaC- 천이금속계 복합분말의 제조방법에 관한 것으로, 더욱 상세하게는 초경 절삭공구 등에 사용되는 나노크기의 TaC- 천이금속계 복합분말을 제조하는 방법에 관한 것이다.

<4> TaC는 WC- TaC- Co계 초경 절삭공구에서 고온 경도를 증가시키고, 피삭재인 철강과의 반응을 억제시키기 위하여 첨가되는 원소로 알려져 있으며, 또한 TaC계 서멧트 재료의 주성분으로 사용되고 있다. 최근 TaC계 탄화물의 미립화에 의하여 공구의 경도가 높아지고 항절력도 높아지며 공구의 내마모성이 증가하여, 공구나 금형제조시 가급적 초미립화된 TaC계 분말을 사용하려고 하고 있다.

<5> TaC 분말을 제조하는 기존의 방법은, 탄탈륨 산화물과 탄소의 혼합 분말을 진공, 불활성 분위기, 수소 분위기 등과 같은 비산화성 분위기에서 1500℃ 내지 1600℃의 고온에서 열처리하여 탄소에 의한 환원/침탄에 의하여 제조한다. 그러나, 이러한 방법을 사용하면 반응온도가 너무 높아서 장치 투자비가 비싸고 전력소비가 많으며, 제조된 TaC의 분말 크기가 1~ 2 μ m 정도로 비교적 조대하다.

【발명이 이루고자 하는 기술적 과제】

<6> 따라서, 본 발명의 목적은 Ta이 함유된 염이나 수용액과 천이금속이 함유된 금속염을 물에 녹이거나 유기용매에 혼합한 후, 분무건조하고 산화열처리하여 Ta와 천이금속의 복합산화물을 얻은 다음, 나노크기의 탄소와 혼합하여 환원/침탄 열처리를 통해 나노구조형 TaC- 천이금속계 복합분말을 제공하는 데 있다.

【발명의 구성 및 작용】

<7> 상기한 목적 달성을 위한 본 발명에 따른 TaC- 천이금속계 복합분말의 제조방법에 있어서, Ta이 함유된 원료와 천이금속을 함유된 수용성 염을 용매에 분산시켜 교반한 후, 교반된 원료를 분무건조하여 전구체 분말을 얻는 단계; 상기 전구체 분말을 하소열처리하여 초미립 Ta- 천이금속 복합산화물 분말을 만드는 단계; 상기 초미립 Ta- 천이금속 복합산화물 분말에 나노크기의 탄소입자를 혼합한 후, 이를 건조하여 복합산화물 분말을 얻는 단계; 및 상기에서 건조된 복합산화물 분말을 비산화성 분위기에서 환원, 침탄 열처리하는 단계를 포함하여 구성된다.

- <8> 상기 Ta이 함유된 원료는, Ta계 염화물염 또는 Ta옥살산이 바람직하며, 또한 상기 용매는 물이나 유기용매인 것이 바람직하다. 이때, 상기 천이금속의 양은 상기 복합분말 중에 1~30중량%의 범위에서 함유되는 것이 바람직하다.
- <9> 상기 하소 열처리는 250℃ 내지 1000℃ 사이의 온도에서 행하는 것이 바람직하다.
- <10> 또한, 상기 환원/침탄은 진공, 불활성 분위기, 수소 분위기 등과 같은 비산화성 분위기 하에서 600℃ 내지 1100℃의 온도로 환원한 후, 다시 1000℃ 내지 1350℃의 온도 사이로 환원, 침탄을 행하는 것이 바람직하다.
- <11> 이하, 본 발명에 대하여 상세히 설명한다.
- <12> 먼저, 본 발명에서 원하는 조성을 갖는 TaC- 천이금속계 복합분말을 제조하기 위하여는, Ta이 함유된 원료와 천이금속을 함유된 금속염을 용매에 녹이거나 분산시킨 혼합원료를 준비하여야 한다. 여기서, 상기 Ta이 함유된 원료로는, Ta계 염화물염 또는 Ta옥살산이 바람직하다. 이러한 Ta이 함유된 원료를 사용해야만 이후의 분무건조나 하소 열처리후 초미립 Ta- 천이금속계 복합산화물 분말을 얻을 수 있다. 또한 상기 용매는 물이나 유기용매를 사용하는 것이 바람직하다.
- <13> 상기 천이금속원소로는, Co, Fe, Ni 등을 들 수 있으며, 그 천이금속의 양은 상기 복합분말 중에 1~30중량%의 범위에서 함유되는 것이 바람직하다. 첨가되는 천이금속원소의 양이 복합분말 중에 1중량% 이하로 함유되면, TaC를 형성하는데 1500℃ 이상의 고온에서 열처리하는 것이 필요하고, 30중량% 이상이면 형성된 TaC- 천이금속 복합분말이 응집되는 경향이 심하다. 따라서, TaC- 천이금속 복합분말에서 천이금속 성분의 양은 1~30중량% 사이의 범위가 바람직하다.

- <14> 상기 혼합원료를 준비되면, 이 혼합원료를 통상의 조건으로 분무건조하여 전구체 분말을 얻는다.
- <15> 그 다음, 상기 전구체 분말을 하소하여 금속 성분이외의 불필요한 성분을 휘발시키거나 반응시켜 제거함으로써, 초미립 Ta 및 천이금속의 복합산화물을 얻는다. 상기 하소 열처리는 250℃ 내지 1000℃ 사이의 온도에서 행하는 것이 바람직하다. 상기 하소 열처리 온도가 250℃ 보다 낮으면, 비금속 유기물이 잔류할 수 있어서 좋지 않고, 1000℃ 이상의 온도에서 하소하면 복합산화물 입자들이 성장하여 초미립 산화물을 얻을 수 없고 분말들의 응집이 심해지는 경향이 있다.
- <16> 그 후, 상기 초미립 Ta- 천이금속 복합산화물 분말에 나노크기의 탄소입자를 볼 밀링자 (Milling Jar)에 장입하여 혼합한 후, 이를 건식 또는 헥산과 같은 습식분위기에서 충분히 밀링하여 탄소와 복합산화물 잘 혼합하는 것이 필요하다.
- <17> 이렇게 건조되어 혼합된 복합산화물 분말은 비산화성 분위기에서 환원, 침탄처리하면 나노크기의 TaC- 천이금속계 복합분말을 얻을 수 있다.
- <18> 상기 환원/침탄 열처리 공정은 진공, 불활성 분위기, 수소 분위기 등과 같은 비산화성 분위기에서 600℃ 내지 1100℃의 온도에서 유지하여 천이금속계 산화물을 환원한 후, 다시 1000℃ 내지 1350℃의 사이에서 유지하여 Ta계 산화물을 환원 및 침탄하는 과정으로 이루어진다.
- <19> 여기서, 천이금속에 대한 환원은 적어도 600℃ 이상, 바람직하게는 600℃ 내지 1100℃의 온도에서 행하는 것이 바람직하다. 천이금속에 대한 환원 온도가 600℃ 이하이면, 환원처리시

간이 길어지고 환원이 제대로 이루어지지 않으며, 1100℃ 이상에서도 환원이 가능하나 수분의 발생으로 TaC의 환원/침탄 열처리시 TaC의 환원이 방해받을 수 있다.

<20> 또한, 환원/침탄 처리는 1000℃ 내지 1350℃의 사이에서 행하는 것이 바람직한데, 환원/침탄 온도가 1000℃보다 낮으면 충분한 환원/침탄이 잘 되지 않고, 1350℃ 이상의 온도에서 환원/침탄하면 TaC 입자가 성장하여 초미립 분말을 얻기가 어렵다.

<21> 이하, 본 발명의 바람직한 실시예를 구체적으로 설명한다.

<22> [실시예]

<23> 발명예 1

<24> 본 실시예에서는 환원/침탄후 최종 목표 조성이 TaC-10중량% Co가 되도록 TaCl₅ 195.46g과 Co질산염[Co(NO₃)₂·6H₂O] 54.53g을 557ml의 증류수에 첨가하여 교반하면서 분무건조를 실시하였다. 이때, 용액의 공급량은 약 20cc/min, 노즐의 회전속도는 약 11,000rpm로 하였으며, 가열된 공기의 유입온도 및 배출구 온도는 각각 215℃ 및 130℃ 정도였다.

<25> 이렇게 분무건조된 전구체 염분말을 약 700℃에서 2시간 유지하여 잔류수분과 비금속 염 성분들을 제거하여 초미립 Ta-Co계 복합산화물 분말을 만들었다.

<26> 염이 제거된 Ta-Co계 복합산화물 분말 12g과 환원침탄제로 나노 탄소분말 3.612g을 첨가하여 볼밀링을 실시하여 탄소가 첨가된 Ta-Co계 복합산화물 분말을 얻었다.

<27> 상기에서 볼밀링된 복합산화물 분말 4g을 약 200cc/min 속도의 고순도 아르곤 분위기에 서 10℃/min의 가열속도로 약 900℃까지 가열하여 2시간 동안 유지하였다. 이어서, 약 7℃/min의 가열속도로 최종 환원온도인 1250℃ 정도까지 가열하여 약 2시간 유지하여 노냉하였다. 이

렇게 환원/침탄되어 제조된 TaC- 10중량% Co 복합분말에 대하여 특성평가를 하고, 그 결과를 표 1에 나타내었다.

<28> 상기 제조된 복합분말에 대한 X선 회절시험 결과, 도 1a와 같이 TaC상이 형성되었으며, 이때 TaC의 결정크기는 약 52nm인 것으로 측정되었다.

<29> 한편, 실제로 TaC-Co 복합분말을 투과전자현미경으로 조사한 결과, 도 2a에 도시된 바와 같이, 50nm 내지 300nm의 분말입자들로 구성되어 있음을 확인할 수 있었다.

<30> **발명예 2**

<31> 본 실시예에서는, 1000cc 용액 속에 Ta₂O₅가 175g 함유된 탄탈늄 옥살산 용액과 Co질산염[Co(NO₃)₂·6H₂O]을 초기원료로 사용하였다. 환원/침탄후 최종 목표 조성이 TaC-5중량% Co가 되도록 상기 탄탈늄 옥살산 용액 621.6cc와 Co질산염 24.68g을 4923cc의 증류수에 첨가하여 교반하면서 분무건조를 실시하였다. 이때, 분무건조 조건은 발명예 1과 같았다.

<32> 이렇게 분무건조된 전구체 염분말을 약 500℃에서 2시간 유지하여 잔류수분과 비금속 염 성분들을 제거하여 초미립 Ta-Co계 복합산화물 분말을 만들었다.

<33> 염이 제거된 Ta-Co계 복합산화물 분말 29g과 환원침탄제로 나노 탄소분말 7.52g을 첨가하여 볼밀링을 실시하여 탄소가 첨가된 Ta-Co계 복합산화물 분말을 얻었다.

<34> 상기에서 볼밀링된 복합산화물 분말 9g을 약 1000cc/min 속도의 고순도 아르곤 분위기에 서 10℃/min의 가열속도로 약 900℃까지 가열하여 2시간 동안 유지하였다. 이어서, 약 7℃/min의 가열속도로 최종 환원온도인 1250℃ 정도까지 가열하여 약 6시간 유지하여 노냉하였다. 이렇게 환원/침탄되어 제조된 TaC- 5중량% Co 복합분말에 대하여 특성평가를 하고, 그 결과를 표 1에 함께 나타내었다.

- <35> 또한, 제조된 복합분말에 대하여 X선 회절시험 결과, 도 1b와 같이 TaC상이 형성되었으며, 이때 TaC의 결정크기는 약 46nm인 것으로 측정되었다.
- <36> 한편, 실제로 TaC-Co 복합분말을 투과전자현미경으로 조사한 결과, 도 2b에 도시된 바와 같이, 50nm 내지 300nm의 분말입자들로 구성되어 있음을 확인할 수 있었다.
- <37> 발명예 3
- <38> 상기 발명예 2와 동일한 방법으로 실시하여 탄소가 첨가된 Ta-Co계 복합산화물 분말을 얻었다.
- <39> 상기에서 불밀링된 복합산화물 분말 9g을 약 1000cc/min 속도의 고순도 아르곤 분위기에서 10℃/min의 가열속도로 약 800℃까지 가열하여 2시간 동안 유지하였다. 이어서, 약 7℃/min의 가열속도로 최종 환원온도인 1100℃ 정도까지 가열하여 약 2시간 유지하여 노냉하였다. 이렇게 환원/침탄되어 제조된 TaC- 5중량% Co 복합분말에 대하여 특성평가를 하고, 그 결과를 표 1에 함께 나타내었다.
- <40> 또한, 제조된 복합분말에 대하여 X선 회절시험 결과, 도 1c와 같이 TaC상이 형성되었으며, 이때 TaC의 결정크기는 발명예 2와 같이 약 46nm인 것으로 측정되었다.
- <41> 한편, 실제로 TaC-Co 복합분말을 투과전자현미경으로 조사한 결과, 도 2c에 도시된 바와 같이, 50nm 내지 300nm의 분말입자들로 구성되어 있음을 확인할 수 있었다.
- <42> **【표 1】**

구분	조성	환원조건	구성상(XRD)	TaC크기	복합분말의 크기
종래예	100TaC	1600℃, 2h	TaC	1~2 μ m	-
발명예 1	90TaC-10Co	900℃, 2h+1250℃, 2h	TaC, Co	52nm	50~300nm
발명예 2	95TaC-5Co	900℃, 2h+1250℃, 6h	TaC, Co	46nm	50~300nm
발명예 3	95TaC-5Co	800℃, 2h+1100℃, 2h	TaC, Co	46nm	50~300nm

- <43> 상기 표 1에서 종래에는, 입자크기가 1~ 2 μ m인 Ta₂O₅와 탄소를 혼합하여 약 1600℃에서 2시간 동안 환원/침탄하여 얻은 TaC 분말이다.
- <44> 상기 표1에서도 알 수 있듯이, 본 발명에 따른 TaC 분말은 종래의 TaC 분말에 비하여 미세할 뿐만 아니라, 이로부터 얻어진 TaC- 천이금속계 복합분말은 나노크기를 갖는 초미립 입자임을 알 수 있었다.
- <45> 이상, 본 발명의 바람직한 실시예에 근거하여 서술되었지만, 본 발명의 기술사상의 범주 내에서 다양한 변형 및 개량이 이루어질 수 있으며, 이러한 변형 및 개량도 본 발명에 속한다는 것을 이 분야에 종사하는 당업자라면 인지할 수 있을 것이다.

【발명의 효과】

- <46> 상술한 바와 같이, 본 발명은 Ta계 염화물 또는 Ta옥살산을 천이금속을 함유하는 수용성 염과 함께 원하는 조성이 되도록 물에 녹이거나 분산시킨 후 분무건조하고 열처리하여 얻은 복합산화물과 나노 카본 분말을 혼합/밀링하여 얻은 복합산화물/탄소혼합 분말을 비산화성 분위기에서 환원/침탄 열처리함으로써, 초미립 TaC- 천이금속계 복합분말을 제공하는 효과가 있다.

【특허청구범위】**【청구항 1】**

TaC- 천이금속계 복합분말의 제조방법에 있어서,

Ta 이 함유된 원료와 천이금속을 함유된 수용성 염을 용매에 분산시켜 교반한 후, 교반된 원료를 분무건조하여 전구체 분말을 얻는 단계;

상기 전구체 분말을 하소열처리하여 초미립 Ta- 천이금속 복합산화물 분말을 만드는 단계;

상기 초미립 Ta- 천이금속 복합산화물 분말에 나노크기의 탄소입자를 혼합한 후, 이를 건조하여 복합산화물 분말을 얻는 단계; 및

상기에서 건조된 복합산화물 분말을 비산화성 분위기에서 환원, 침탄 열처리하는 단계를 포함하여 구성되는 것을 특징으로 하는 나노구조형 TaC- 천이금속계 복합분말의 제조방법.

【청구항 2】

제1항에 있어서,

상기 Ta이 함유된 원료는, Ta계 염화물염 또는 Ta옥살산이고, 상기 용매는 물이나 유기 용매인 것을 특징으로 하는 제조방법.

【청구항 3】

제1항에 있어서,

상기 천이금속의 양은 상기 복합분말 중에 1~ 30중량%의 범위에서 함유되는 것을 특징으로 하는 제조방법.

【청구항 4】

제1항에 있어서,

상기 하소는 250℃ 내지 1000℃ 사이의 온도에서 행하는 것을 특징으로 하는 제조방법.

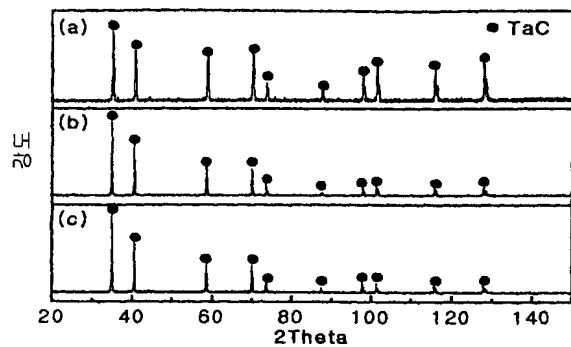
【청구항 5】

제1항에 있어서,

상기 환원, 침탄 열처리는 600℃ 내지 1100℃의 온도 사이에서 환원한 후, 다시 1000℃ 내지 1350℃의 온도 사이에서 환원, 침탄을 행하는 것을 특징으로 하는 제조방법.

【도면】

【도 1】



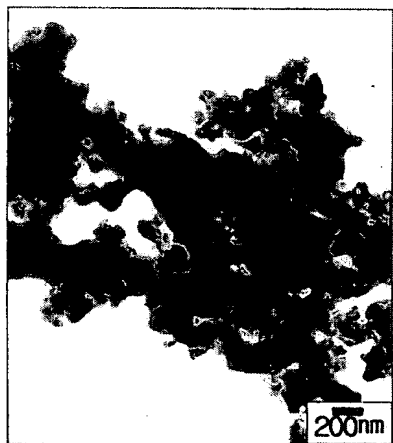
【도 2】



(a)



(b)



(c)